

28.05.99

EU

JP 99/02847

日本国特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

REC'D 16 JUL 1999

WIPO PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application:

1999年 2月 3日

出願番号
Application Number:

平成11年特許願第026779号

出願人
Applicant(s):

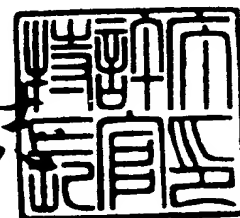
ダイセル化学工業株式会社

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

1999年 6月18日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

伴佐山 建



出証番号 出証特平11-3043098

【書類名】 特許願

【整理番号】 984131

【提出日】 平成11年 2月 3日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08L 67/04
C08L 93/00

【発明者】

 【住所又は居所】 兵庫県姫路市網干区新在家 9 4 0

 【氏名】 仲田 幸司

【特許出願人】

 【識別番号】 000002901

 【氏名又は名称】 ダイセル化学工業株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100090491

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 三浦 良和

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 026033

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

 【包括委任状番号】 9402017

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 耐衝撃性に優れた生崩壊性樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ラクトン樹脂及び脂肪族ポリエステル樹脂からなる生分解性樹脂組成物100重量部、並びに、熱可塑性樹脂5～20重量部からなる生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 2】 生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂5～70重量部及び脂肪族ポリエステル樹脂95～30重量部（ここで、ラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計は100重量部である。）からなる請求項 1 に記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 3】 生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに脂肪酸アミドを0.2～5重量部含む請求項 1 ～ 2 のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 4】 生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに液状滑剤を0.1～3重量部含む請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 5】 生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに微粉末シリカを0.1～3重量部含む請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 6】 生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらにタルクを10～40重量部含む請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 7】 熱可塑性樹脂がデュポン衝撃強度 $10 \text{ kgf} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2$ 以上（シート厚0.35mm）を有する請求項 1 に記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 8】 熱可塑性樹脂がゴム変性スチレン系樹脂である請求項 7 に記載の生崩壊性樹脂組成物。

【請求項 9】 ゴム変性スチレン系樹脂がゴム含量1～20重量%のゴム変性スチレン系グラフト共重合体である請求項 8 に記載の生崩壊性樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、特定組成のラクトン樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂、脂肪酸アミド及び高衝撃強度の熱可塑性樹脂よりなり、さらに必要に応じて液状滑剤、微粉末シリカ、及びタルクを添加してなる生崩壊性樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

生分解性樹脂とは、一般には『使用時は汎用のプラスチックとほぼ同等の物性を持つが、一度廃棄されると、活性汚泥中、土壤中、水中、堆肥中などの自然環境下において速やかにバクテリアやカビなどの微生物により、分解、資化されるプラスチック』のことをいう。現在、天然素材であるバイオセルロースや澱粉含有プラスチック、低置換度セルロース系エステル、微生物の生産する脂肪族ポリエステル、合成脂肪族ポリエステル等が生分解性を有するプラスチックとして開発が進められている。しかしながらこれらの樹脂は、生分解性、機械物性ともに不十分であり、それらの早急な向上が待たれている。特に生分解性を付与するため物性面で性能が不足している樹脂が目立つ。

既に市場に出回っている生分解性ポリエステル樹脂は、特開平8-029989、特開平9-194700号公報等に記載されているが、現行の汎用樹脂と比較すると機械物性の面で不十分である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

本発明が解決しようとしている課題は、生崩壊性で、機械物性、特に衝撃強度を大きく向上させた生崩壊性樹脂組成物を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】

先にも述べたように一般に生分解性樹脂（生分解性プラスチックとも言う。）と呼ばれるものは、生分解性を付与するために機械強度が犠牲になっているものが多い。

本発明者は、高い生分解性を有するラクトン樹脂／脂肪族ポリエステル混練物に少量の高衝撃強度を有するゴム変性スチレン系樹脂を配合、混練することによ

り、それらのデュポン衝撃強度が飛躍的に向上することを見出した。

本発明者は、この知見に基づき、ラクトン樹脂、合成ポリエステル樹脂及び脂肪酸アミドからなる生分解性樹脂組成物に、高い耐衝撃性を有する熱可塑性樹脂を少量ブレンドすることにより、樹脂の生分解性をほとんど損なうことなく、その衝撃強度が大きく向上することを見出し、本発明を完成するに至った。

また、この樹脂組成物の生分解性については、少量の非生分解成分の存在により残留物が存在するものの、大半の生分解成分自体は阻害されることなく高い生分解性を示す。成形品にした場合にも、元の形状は示さず、残留物の量は少量であり、ほとんど分解せずにそのままの形で残存する汎用樹脂に比べると問題にならない形状及び量である。本発明ではこのような生分解性の状態を生崩壊性という。

【0005】

すなわち本発明の第1は、ラクトン樹脂及び脂肪族ポリエステル樹脂からなる生分解性樹脂組成物100重量部、並びに、熱可塑性樹脂5〜20重量部からなる生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第2は、生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂5〜70重量部及び脂肪族ポリエステル樹脂95〜30重量部（ここで、ラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計は100重量部である。）からなる本発明の第1に記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第3は、生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに脂肪酸アミドを0.2〜5重量部含む本発明の第1〜2のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第4は、生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに液状滑剤を0.1〜3重量部含む本発明の第1〜3のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第5は、生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、さらに微粉末シリカを0.1〜3重量部含む本発明の第1〜4のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第6は、生分解性樹脂組成物がラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂

脂の合計100重量部に対して、さらにタルクを10～40重量部含む本発明の第1～5のいずれかに記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第7は、熱可塑性樹脂がデュポン衝撃強度 $10 \text{ kgf} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2$ 以上（シート厚0.35mm）を有する本発明の第1に記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第8は、熱可塑性樹脂がゴム変性スチレン系樹脂である本発明の第7に記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

本発明の第9は、ゴム変性スチレン系樹脂がゴム含量1～20重量%のゴム変性スチレン系グラフト共重合体である本発明の第8に記載の生崩壊性樹脂組成物を提供する。

【0006】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について具体的に説明する。

本発明の生崩壊性樹脂組成物は、主要成分としてラクトン樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂及び熱可塑性樹脂からなり、さらに必要に応じて脂肪酸アミド、液状滑剤、及び／又は、タルクもしくは微粉末シリカを添加したものである。

【0007】

ラクトン樹脂

本発明で使用するラクトン樹脂は、 ϵ -カプロラクトン、4-メチルカプロラクトン、3, 5, 5-トリメチルカプロラクトン、3, 3, 5-トリメチルカプロラクトン、 β -プロピオラクトン、 γ -ブチロラクトン、 δ -バレロラクトン、エナントラクトン等をモノマーに使用して、これらのホモポリマーでも共重合体でもよいが、常温で軟化しないものが好ましい。この観点から、高分子量であって軟化点が55℃以上で、安定した性能が得やすいポリカプロラクトンが好ましい。

ポリカプロラクトンは、例えばアルコールなどの活性水素化合物を開始剤として、これに ϵ -カプロラクトンを常法により開環重合させて得られるものである。

前記開始剤の官能数は、特に制限なく、エチレングリコール、ジエチレングリ

コール等の2官能のものやグリセリン、トリメチロールプロパン等の3官能のものが好ましく使用できる。

ポリカプロラク톤の分子量は、低分子量から高分子量まで使用できるが、数平均分子量が10,000~200,000のものが好ましく、さらに好ましくは40,000~100,000のものである。

上記範囲内で、低分子量のポリカプロラク톤を使用した場合は、ラク톤樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の混練樹脂の耐熱性や機械強度の低下が大きくなるので添加量は制限されるが、混練樹脂の溶融粘度が低下し、成形性が向上する等のメリットが現われる。しかし高分子量のポリカプロラク톤を使用する方が配合率を多くすることができ、耐熱性、生分解性をいずれもバランス良く保たせることができて好ましい。

上記分子量の範囲はポリバレロラク톤等の他のラク톤樹脂についても言える。

ラク톤樹脂の数平均分子量が上記範囲より低すぎると、生分解性は高くなるがプラスチック成形品としての物性が不十分になり、高すぎると高物性値を示すが生分解性を損なうおそれがある。

【0008】

脂肪族ポリエステル樹脂

本発明で使用する脂肪族ポリエステル樹脂は、特に限定されるものではないが、融点が100℃以上で、熱可塑性及び生分解性を有するものである。

例えば特開平5-310898号公報に示されているようなウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂、特開平9-095529号公報に示されているようなエステル交換反応により得られるウレタン結合を含まない脂肪族ポリエステル樹脂のどちらも使用可能である。

また、本発明で使用する脂肪族ポリエステル樹脂には、微生物の生産するポリエステルも含まれる。

【0009】

ウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂としては、コハク酸と1,4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、コハク酸とエチレングリコールから得

られるポリエステル樹脂、シュウ酸と1,4-ブタンジオールから得られるポリエステル樹脂、シュウ酸とエチレングリコールから得られるポリエステル樹脂を脂肪族ジイソシアネート化合物により高分子量化したもの等が好ましい。特に好ましくはコハク酸と1,4-ブタンジオールから得られる重縮合物を脂肪族ジイソシアネート化合物により高分子量化したものが良い。

ここで使用される脂肪族ジイソシアネート化合物としては、ヘキサメチレンジイソシアネート、リジンジイソシアネートメチルエステル $\{ \text{OCN}-(\text{CH}_2)_4-\text{CH}(\text{NCO})(-\text{COOCH}_3) \}$ 、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等が例示されるが、中でもヘキサメチレンジイソシアネートが好ましい。またウレタン結合を含む脂肪族ポリエステル樹脂の好ましい数平均分子量としては、20,000以上、更に好ましくは40,000以上の範囲である。

【0010】

またエステル交換反応によるポリエステル樹脂としては、コハク酸誘導体（コハク酸誘導体とはコハク酸自体、コハク酸メチル又はコハク酸ジメチル等のアルキルエステル等を言う。以下、他のジカルボン酸についても同じである。）、シュウ酸誘導体、アジピン酸誘導体からなるジカルボン酸誘導体群とエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,4-ブタンジオール、1,4-シクロヘキサジメタノールからなるジオール群より、それぞれ1つ以上選ぶ組合せを共重合して得られるポリエステル共重合体が挙げられる。

または、ポリエステル樹脂としては、上記ジカルボン酸誘導体とジオールの組合せに、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール等のポリアルキレングリコールを共重合して得られるポリエステルエーテル；ジグリコール酸等のジオキシカルボン酸誘導体を共重合して得られるポリエステルエーテル；ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジプロピルカーボネート、ジフェニルカーボネート等の有機カーボネート化合物を共重合して得られるポリエステルカーボネートなどであってもよい。特に好ましくは、コハク酸誘導体、1,4-ブタンジオール及び有機カーボネート化合物からなる共重合体が好ましい。

【0011】

微生物が生産する脂肪族ポリエステルとしては、ポリ3-ヒドロキシ酪酸、ポリ3-ヒドロキシ吉草酸または4-ヒドロキシ吉草酸のようなポリヒドロキシアルカン酸の単独重合体；3-ヒドロキシ酪酸と3-ヒドロキシ吉草酸との共重合体、3-ヒドロキシ酪酸と4-ヒドロキシ吉草酸との共重合体等が挙げられるが、好ましくは、機械物性、生分解性の両面から、3-ヒドロキシ酪酸と4-ヒドロキシ吉草酸との共重合体がよい。

【0012】

脂肪族ポリエステル樹脂とラクトン樹脂との比率

脂肪族ポリエステル樹脂とラクトン樹脂との配合割合は、双方の分子量、要求される生分解性にもよるが、前者100重量部に対し後者が1~200重量部、更に好ましくは5~50重量部、特に20~40重量部の範囲である。

【0013】

ラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂とを混練する場合は、両者に相溶性のあることが混練して得られる樹脂組成物の機械特性の面から好ましいが、両者の相溶性が無い場合は、例えば、被混練樹脂成分とポリカプロラクトン成分の共重合体等の相溶化剤、例えば両者の中間の極性を有する樹脂などの添加も好ましく使用できる。

相溶化剤としては、特に制限はなく、ラクトン樹脂と脂肪族ポリエステルとを相溶化させる性質を有するものであればよい。相溶化剤を加えることにより互いの樹脂が極めて均一に分散し、優れた物性を有する混合物が得られる。

【0014】

熱可塑性樹脂

本発明で使用する熱可塑性樹脂としては特に限定されるものではないが、ポリスチレン系樹脂（ポリスチレン単独又はゴム変性スチレン系樹脂など）、オレフィン系樹脂（ポリプロピレン、メタロセン触媒などを用いて得られる分子量分布のシャープなポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリメチルペンテンなどの結晶性又は非結晶性オレフィン系樹脂）、ポリエステル系樹脂（ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのポリアルキレンテレフタレート；ポリエチレンナフタレート等のポリアルキレンナフタレート；又

はポリアルキレンナフタレート単位を50モル%以上、好ましくは70モル%以上含むコポリエステル、他の芳香族ポリエステルなど）、ポリアミド樹脂（ナイロン6、ナイロン66、ナイロン10、ナイロン12、ナイロン610、ナイロン612などの単独又は共重合ナイロン、芳香族ポリアミドなど）、ポリカーボネート系樹脂（ビスフェノールA型ポリカーボネートなど）、ポリスルホン系樹脂（ポリスルホン、ポリエーテルスルホンなど）、ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリフェニレンスルフィド系樹脂、ポリエーテルケトン系樹脂、ポリアセタール系樹脂（単独又は共重合ポリアセタール）、熱可塑性エラストマー（熱可塑性ポリウレタンエラストマー、ポリエステルエラストマーなど）が例示できる。これらの熱可塑性樹脂は単独で、又は2種以上組み合わせて使用してもよい。

【0015】

これらの熱可塑性樹脂の中で、少量の添加でデュポン衝撃強度を大きく向上させるものとして、ゴム変性スチレン系樹脂（軟化点約70℃）が好ましい。

ゴム変性スチレン系樹脂はゴム成分と、ゴム変性されていないスチレン系樹脂との混合による混和物で構成された耐衝撃性スチレン系樹脂であってもよいが、(a)ゴム成分の存在下で少なくとも芳香族ビニル単量体を重合して得られるゴム成分と芳香族ビニル単量体とのグラフト重合体、および／又は (b)ゴムブロックAと芳香族ビニル重合体ブロックBとのブロック共重合体（A B A型又はB A B型等のブロック共重合体など）が通常使用される。

このうち、少量のゴム添加量で大きな耐衝撃性が得られる、ゴム変性スチレン系グラフト共重合体（a）が特に好ましい。

ブロック共重合体（b）は熱可塑性エラストマーを形成する場合が多い。また、グラフト共重合体（a）はランダム共重合体であってもよく、ブロック共重合体の構造はリニア状でもスター状であってもよい。

【0016】

好ましいゴム変性スチレン系グラフト共重合体（a）としては、グラフト重合体〔特に耐衝撃性ポリスチレン、例えばスチレン-ブタジエン共重合体（SB樹脂）、ブタジエン-スチレン-無水マレイン酸共重合体（ゴム変性スチレン-無水マ

レイン酸共重合体)、スチレン-アクリロニトリル-ブタジエン共重合体 (ABS樹脂)、AXS樹脂 (式中Aはアクリロニトリル、Xはエチレン-プロピレンゴム (EPDM ゴム)、アクリルゴム、エチレン-酢酸ビニル共重合体、塩素化ポリエチレンから選択された少なくとも一種のゴム成分、Sはスチレンをそれぞれ示す。)]、スチレン系ブロック共重合体 (例えば、スチレン-ブタジエン-スチレン (SBS) 共重合体)、スチレン-イソプレン-スチレン (SIS) 共重合体などの熱可塑性エラストマー) などが挙げられる。これらのゴム変性スチレン系グラフト共重合体 (a) は水素添加物であってもよい。上記の内、特に好ましくは、SB樹脂、ゴム変性スチレン-無水マレイン酸共重合体、スチレン-アクリロニトリル-ブタジエン共重合体 (ABS樹脂)、スチレン-ブタジエン-スチレン (SBS) ブロック共重合体、スチレン-イソプレン-スチレン (SIS) ブロック共重合体、およびこれらの水添物である。

ゴム変性スチレン系グラフト共重合体 (a) に含まれるゴム成分の含有量は、例えば1~20重量%、好ましくは5~15重量%、更に好ましくは8~10重量%である。

上記ゴム成分としては、特に制限はなく、従来ゴム変性スチレン系樹脂に慣用されているもの、例えば天然ゴムやポリブタジエンゴム、ポリイソプレンゴム、スチレン-ブタジエン系共重合体ゴム、スチレン-イソプレン系共重合体ゴム、ブチルゴム、エチレン-プロピレン系共重合体ゴム等の合成ゴム、あるいはこれらのゴムとスチレンとのグラフト共重合体ゴム等を用いることができる。特に好ましいのはスチレン-ブタジエン系共重合体ゴムである。このスチレン-ブタジエン系共重合体ゴムとしては、数平均分子量が50,000~500,000の範囲にあり、かつスチレン類で形成される重合体ブロックの含有量が10~60重量%の範囲にあるものが特に好ましい。該分子量が50,000未満のものでは耐衝撃性が十分ではないし、500,000を超えると成形時の流動性が低下するようになり好ましくない。またこのスチレン-ブタジエン系共重合体ゴムに数平均分子量が50,000~500,000程度のポリブタジエンゴムを適宜配合したものを用いてもよい。

【0017】

上記熱可塑性樹脂は、好ましくは熱可塑性樹脂単独で成形したシート（厚さ0.35mm）のデュポン衝撃強度が $10\text{ kgf} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2$ 以上、特に $15\text{ kgf} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2$ 以上のものである。

【0018】

生分解性樹脂組成物と熱可塑性樹脂との比率

生分解性樹脂組成物と熱可塑性樹脂との配合割合は、生分解性樹脂組成物単体の機械物性と生分解性、及び最終的に要求される生崩壊性樹脂組成物の機械物性、生分解性にもよるが、生分解性樹脂組成物100重量部に対し熱可塑性樹脂が5～20重量部、更に好ましくは8～12重量部である。

【0019】

生分解性樹脂組成物に使用される樹脂と熱可塑性樹脂とを混練する場合、両者に相溶性のあることが好ましいが、両者の相溶性が無い場合、例えば、生分解性樹脂成分と熱可塑性樹脂の共重合体等の相溶化剤、例えば両者の中間の極性を有する樹脂などの添加も好ましく使用できる。

これに使用する相溶化剤としては、特に制限はなく、生分解性樹脂、熱可塑性樹脂とを相溶化させる性質を有するものであればよい。相溶化剤を加えることにより互いの樹脂が極めて均一に分散し、優れた物性を有する混合物が得られる。

【0020】

脂肪酸アミド

本発明で使用する脂肪酸アミドとしては特に限定されるものではないが、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、高純度パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、精製ステアリン酸アミド、高純度ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、高純度ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド、オレイン酸アミド等の飽和脂肪酸モノアミド類；メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスイソステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、エチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド、ヘキサメチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、N,N'-ジステアリルアジピン酸アミド、N,N'-ジステアリルセバ

シン酸アミド等の飽和脂肪酸ビスアミド類；オレイン酸アミド、精製オレイン酸アミド、精製エルカ酸アミド、リシノール酸アミド等の不飽和脂肪酸モノアミド類；エチレンビスオレイン酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、N,N'-ジオレイルアジピン酸アミド、N,N'-ジオレイルセバシン酸アミド等の不飽和脂肪酸ビスアミド類；N-ステアリルステアリン酸アミド、N-オレイルオレイン酸アミド、N-ステアリルオレイン酸アミド、N-オレイルステアリン酸アミド、N-ステアリルエルカ酸アミド、N-オレイルパルミチン酸アミド等の置換アミド類；メチロールステアリン酸アミド類；メチロールベヘン酸アミド等のメチロールアミド類；N,N'-ジステアリルイソフタル酸アミド、メタキシリレンビスステアリン酸アミド等の芳香族ビスアミド類等の脂肪酸アミド類が挙げられる。これらは常温で固体の滑剤である。

上記脂肪酸アミドの中で、本発明による樹脂組成物の用途が多岐にわたる場合、安全性が高く、かつFDA(米国食品医薬品局)に登録されているエチレンビスステアリン酸アミド、ステアリン酸アミド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミドが好ましい。

脂肪酸アミドを選択する場合には、もちろん各種のラクトン樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂および熱可塑性樹脂の融点又は軟化点に応じて、その融点又は軟化点以下のアミドを選択する必要がある。例えば、ラクトン樹脂及び脂肪族ポリエステル樹脂の融点を考慮して、脂肪酸アミドとしては160℃以下の脂肪酸アミドが選択される。

【0021】

脂肪酸アミドの配合割合は、ラクトン樹脂と脂肪族ポリエステル樹脂の合計100重量部に対して、脂肪酸アミド0.2～5重量部、好ましくは0.3～1.5重量部の範囲である。

脂肪酸アミドの配合割合が0.2重量部未満ではブロッキング防止効果が少なく、一方5重量部より多いとフィルム等の成形品では滑りも大きくなり過ぎ、印刷適性、接着性等も悪くなる。

【0022】

液状滑剤

本発明の生崩壊性樹脂組成物には、さらに液状滑剤を添加することができる。

上記液状滑剤としては、融点が70℃以下の、好ましくは常温で液状のものが使用される。

液状滑剤としては、流動パラフィン、パラフィンワックス；ステアリルアルコール；ステアリン酸；及びステアリン酸ブチル、ステアリン酸モノグリセリド、ペンタエリスリトールテトラステアレート、ステアリルステアレート等のステアリン酸エステル類等が挙げられる。

液状滑剤として最も望ましい流動パラフィンは、経口急性毒性（ラット）LD50が5g/kgであるので非常に安全であり、食品衛生法の食品添加物として認められていて非常に好都合な材料である。

液状滑剤の添加量は、生分解性樹脂組成物100重量部に対して、液状滑剤0.1～3重量部、好ましくは0.3～0.6重量部である。

液状滑剤を混合する場合は、樹脂を含む全体の系が、上述のそれぞれの固体滑剤の融点以上の時は実用上使用可能であるが、望ましくは室温において液体である流動パラフィンを使用することが作業上最も良い。

【0023】

微粉末シリカ

本発明の生崩壊性樹脂組成物には、さらに微粉末シリカを添加することができる。

微粉末シリカとしては、湿式法でつくられたシリカや、四塩化ケイ素の酸水素塩中での高温加水分解により製造されたシリカ等が充当されるが、特に粒径が50nm以下のものが好ましい。

微粉末シリカの添加量は、生分解性樹脂組成物100重量部に対して、微粉末シリカを0.1～3重量部、好ましくは0.3～1.0重量部である。

【0024】

タルク

本発明の生崩壊性樹脂組成物には、さらにタルクを添加することができる。

タルクの添加量は、生分解性樹脂組成物100重量部に対して、タルクを10～40重量部、好ましくは20～30重量部である。

【0025】

本発明の生崩壊性樹脂組成物には、各種の樹脂添加剤を添加することができる。

樹脂添加剤としては、可塑剤、熱安定剤、増量剤、炭酸カルシウム等の充填剤、滑剤、着色剤、難燃剤、耐水化剤、流滴剤、自動酸化剤、紫外線安定剤、架橋剤、抗菌剤、除草剤、酸化防止剤、脱臭剤、核剤、帯電防止剤、光分解又は生分解促進剤等を添加することができる。

【0026】

ラクトン樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂及び熱可塑性樹脂と脂肪酸アミド、液状滑剤、微粉末シリカ、タルク等の混練方法は、一般的な方法が好ましく使用でき、具体的にはペレットや粉体、固体の細片等をヘンシェルミキサーやリボンミキサーで乾式混合し、単軸や2軸の押出機、バンバリーミキサー、ニーダー、ミキシングロール等の公知の熔融混合機に供給して熔融混練することができる。また、液状のラクトン樹脂を添加する場合でも、同様の方法で混練することができる。

【0027】

本発明により得られる樹脂は、生分解性樹脂成分の生分解性を損なわず、生分解性樹脂単体よりも遙かに強い衝撃強度を持つものとなる。

【0028】

【実施例】

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

成形品の物性は次により測定した。

デュポン衝撃強度：JIS K7211に準じる。

降伏強度、破断伸度、引張弾性率：JIS K7113に準じる。

サンプルの生分解性評価方法は、JIS K6950に準じた活性汚泥を使用する方法や、土壌中の埋設、海水中や河川中への浸漬、コンポストでの評価など種々あるが、以下の実施例では、一般フィールドでの分解性と相関関係があるとされるJIS K6950に準じて行った。

【0029】

(製造例1)

コハク酸ジメチル0.8mol、1,4-ブタンジオール1.03molを、触媒としてチタンイソプロポキシド0.05molを使用し、初めに常圧、160℃で反応させて、発生したメタノールを系外へ流出させる。メタノールの流出がなくなったところで反応温度を180℃にしてさらにメタノールを流出させる。メタノールの流出がなくなったところで、反応温度を200℃にしてさらにメタノールを流出させる。メタノールの流出がなくなったところでジエチルカーボネートを0.2mol加え、エタノールを流出させる。流出がなくなったところで反応温度を215℃として反応圧力を0.5 torrにし、さらに流出物を反応系外へ流れさせる。減圧を開始して6時間後にポリエステルカーボネート樹脂（脂肪族ポリエステル樹脂）（I）が得られる。

【0030】

(実施例1)

ポリエステルカーボネート樹脂（I）70重量部とポリカプロラクトン（PH 7,ダイセル化学工業（株）製、数平均分子量70,000）（II）30重量部に、（I）と（II）の合計100重量部に対して、0.6重量部のステアリン酸アミド、30重量部のタルク加えたものを二軸混練押出機で混練、押出、ペレット化し、生分解性ポリエステル樹脂組成物（C）を得た。

さらに、上記生分解性ポリエステル樹脂組成物（C）90重量部にゴム変性ポリスチレン系グラフト樹脂（D）（ダイセル化学工業（株）製）10重量部を二軸混練押出機で混練、押出、ペレット化して、耐衝撃性の生崩壊性樹脂組成物（E）を得た。

【0031】

(成形物の物性)

上記で得た生分解性ポリエステル樹脂組成物（C）及び耐衝撃性の生崩壊性樹脂組成物（E）をTダイによる押出成形により、640mm幅、0.35mm厚のシートに成形し、その引張強度及びデュポン衝撃強度を調べた。それらの結果を表1に示す。

【0032】

(生分解性試験)

上記で得られた生分解性ポリエステル樹脂組成物（C）及び生崩壊性樹脂組成物（

E)の生分解性試験を行った。試験方法についてはJIS K6950に準じた活性汚泥を用いた促進試験で行った。結果を図 1 に示す。

グラフからも判るようにゴム変性スチレン系樹脂をブレンドしても、いくらか残存物は残るものの、生分解性樹脂成分は分解性を阻害されることなく、良好な生分解性を示している。

【 0 0 3 3 】

(比較例 1)

生分解性ポリエステル樹脂組成物(C)のみを使用して実施例 1 と同様の成形方法で同形状のシート(640mm幅,0.35mm厚)を成形した。そして、実施例 1 と同様にこのシートの物性及び生分解性を測定した。結果を表 1 及び図 1 に示す。

【 0 0 3 4 】

(比較例 2)

ゴム変性ポリスチレン系グラフト樹脂(D)のペレットのみを用いて、実施例 1 と同様の成形方法で同形状のシート(640mm幅,0.35mm厚)を成形した。そして、実施例 1 と同様にこのシートの物性及び生分解性を測定した。結果を表 1 及び図 1 に示す。

【 0 0 3 5 】

【表 1】

表 1

	比較例 1	実施例 1	実施例 2	比較例 2
	(C) 100	(C)/(D) 90/10	(C)/(D) 70/30	(D) 100
デュボノ衝撃強度 (kgf・cm/cm ²)	30.3	43.4	44.8	12.0
降伏強度 MD (kgf/cm ²)	250	230	250	300
TD (kgf/cm ²)	270	250	260	290
破断伸度 MD (%)	31	3.5	4.5	16
TD (%)	215	130	80	25
引張弾性率 MD (kgf/cm ²)	17400	17300	20200	27500
TD (kgf/cm ²)	19500	18100	19600	26100

【0036】

【発明の効果】

本発明によれば、生崩壊性樹脂組成物の耐衝撃性を飛躍的に向上させることができた。ゆえに汎用樹脂の代替各分野で利用できる可能性が出てきた。

また生崩壊性樹脂組成物においては、生分解性樹脂成分の生分解性はほとんど損なわれることなく良好な分解性を示した。生分解後、最終的に残る非分解性成分も少量であるので、ゴミとして堆積する量が少なく汎用樹脂を使用することになると環境問題の点からも有利である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

各樹脂又は樹脂組成物の活性汚泥による生分解性の経時変化を示す図である。

【符号の説明】

●印は本発明の生崩壊性樹脂組成物（E）を示す。

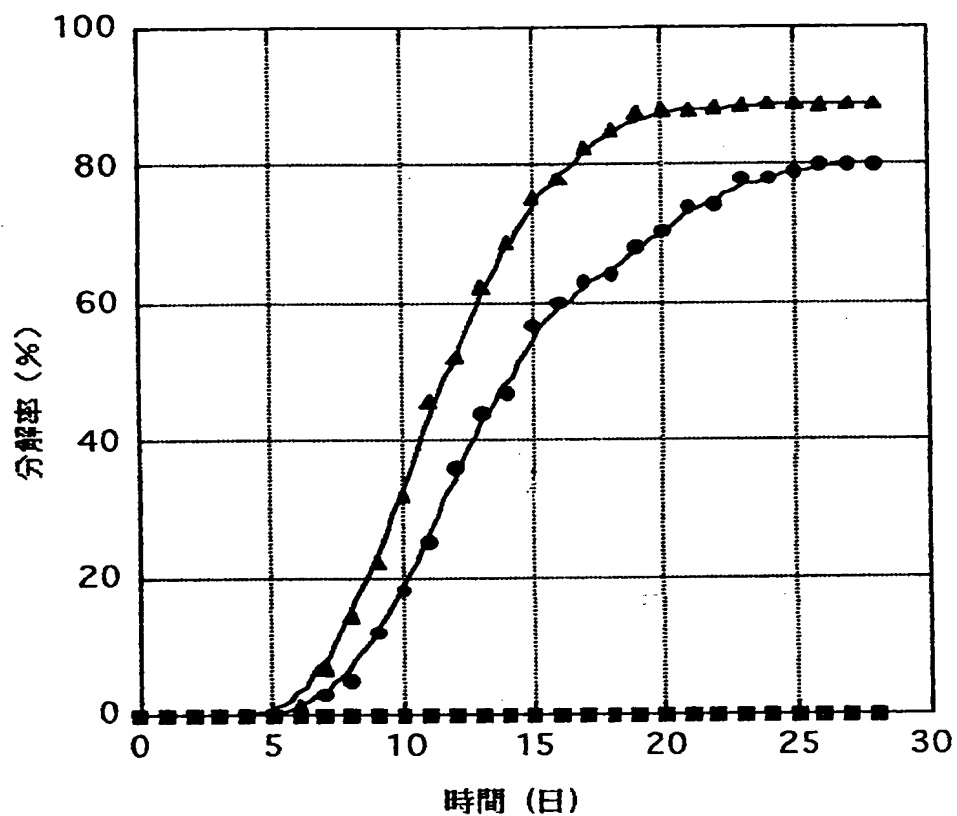
▲印は生分解性ポリエステル樹脂組成物（C）を示す。

特平 1 1 - 0 2 6 7 7 9

■印はゴム変性ポリスチレン系グラフト樹脂 (D) を示す。

【書類名】 図面

【図 1】



活性汚泥による各サンプルの生分解性

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 生崩壊性で、機械物性、特に衝撃強度を大きく向上させた生崩壊性樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 ラクトン樹脂及び脂肪族ポリエステル樹脂からなる生分解性樹脂組成物100重量部、並びに、熱可塑性樹脂5～20重量部からなる。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002901]

1. 変更年月日	1990年 8月28日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府堺市鉄砲町1番地
氏 名	ダイセル化学工業株式会社